

アイスレンズの成長面近傍の微視的観察とその生成モデル

渡辺晋生*

Microscopic Observation Near Growth Surface of Ice Lens and the Ice Lensing Model.

Kunio WATANABE

Faculty of Bioresources, Mie University, 1515 Kamihama Tsu, Japan

1. はじめに

上が冷やされ凍結しつつあるとき、未凍土中の水が凍結面付近に集まりレンズ状の氷として析出することがある。この凸レンズ状をした析出水をアイスレンズという(図1)。アイスレンズの特徴の一つに、発生と成長を繰り返し、とびとびに層をなすことがある。アイスレンズの成長は地表を数十cmも隆起させることがあり(凍上現象)、農地の灌漑排水系や道路、建物の基礎に深刻な被害を与える。また、アイスレンズの生成にともなう地表付近への土中水の移動は、地盤の軟弱化や塩の集積を引き起こすこともある。こうした凍結害を防ぐためにアイスレンズの生成機構の解明が求められている。またアイスレンズは、土だけでなく多くの多孔質体中(例えば、広井・水崎, 1991; Willen and Dash, 1995)にも生じる。このため、アイスレンズの生成機構の解明は物理化学、生物(Mazur, 1970; Wisniewski *et al.*, 1997)、材料工学、食品加工(Thyholt and Isaksson, 1997)、医学、宇宙開発など様々な分野からも求められている。

アイスレンズの生成による凍上現象に関する研究は、Conte (1850) や Taber (1929) の先駆的な研究に始まり、今日までも数多くなされている。現在、提唱されている主なアイスレンズの生成理論には毛管理論(Sill and Skapski, 1956; Penner, 1966)、二次凍上理論(Miller, 1972)、氷晶析出能概念(Konrad and Morgenstern, 1980)を用いた理論などがある。中でも、Miller (1972) の二次凍上理論は、アイスレンズのとびとびな層の生成を扱える数少ない理論であり、多くの研究例や改良が報告されている(例えば Miller and Koslow, 1980; Gilpin, 1980)。二次凍上理論は、アイスレンズと凍結面の間に部分的凍結領域(フローゼンフリ

ンジ)が存在するとし、この領域の各相の応力を計算することで、アイスレンズのとびとびの生成を説明している。しかし、このフローゼンフリンジの存在は実験的には確認されておらず、また計算に用いる応力分配関数も理論的には説明されていない。

現在、アイスレンズの生成に関する研究の問題点として、次の二点があげられる。第一に、凍結面近傍の微細構造、つまりフローゼンフリンジ中の水の状態を明らかにすることである。次に、とびとびに発生と成長を繰り返すアイスレンズの動的な生成機構を説明することである。これらの問題点を解明するために、筆者らは種々のアイスレンズ生成実験を行い(渡辺ら, 1997; Watanabe *et al.*, 1997; 武藤ら, 1998; Mutou *et al.*, 1998; 渡辺ら, 1999a; Muto *et al.*, 1999; Watanabe and Mizoguchi, 2000; 武藤ら, 2000)、アイスレンズの生成モデル(渡辺ら, 1999b; Watanabe *et al.*, 2000)を考えてきた。本報では、これらの研究を紹介し、現在までに得られた成果と問題点をまとめる。

2. 一方向凍結実験

2.1 試料と装置

土粒子はその大きさや形、電気的性質などが不均一である。またアイスレンズの成長は、水分移動を伴う複雑な結晶成長現象である。アイスレンズの生成機構を理解するには、こうした不均一性や複雑さをとりのぞいた理想的な試料の凍結を、連続的かつ微視的に直接観察することが有効である。そこで、筆者らは一方向凍結装置を作製し、藤森土と粒径が均一なガラス粉粒体、およびガラス粉粒体混合試料を用いて凍結実験を行った。

藤森土は凍上性に富むことで知られる実際の土、均一粒径ガラス粉粒体(図2)は直径の揃った(直径=2.2,

*三重大学生物資源学部, 〒514-8507 津市上浜町1515

キーワード: アイスレンズ, 凍上, その場観察, 一方向凍結, 多孔質体



図-1 土中に見られるアイスレンズ。

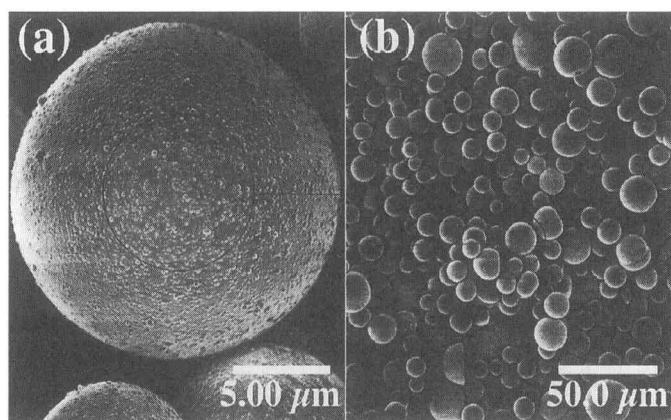


図-2 均一粒径ガラス粉粒体（平均直径 $9.7\mu\text{m}$ ）の電子顕微鏡写真。

(a) は (b) を高倍率で観察したもの。(Watanabe and Mizoguchi, 2000 より引用)

5.3, 9.7, 50, 200 μm) 単分散性の真球状ガラス微粒子、ガラス粉粒体混合試料は、各均一粒径ガラス粉粒体を混ぜ合わせ、藤森土と同様の粒度組成を持つように調整した試料である。なお、使用したガラス粉粒体は $120\text{m}^2\text{g}^{-1}$ 以上の比表面積を持ち、 0°C 以下に冷やされても十分な不凍水を持つことが核磁気共鳴装置による測定から確認されている(渡辺・溝口, 1997)。

図3に一方向凍結実験法の概要を示す。まず、薄い(厚み3mm)板状のセルに、純水で飽和させた試料を詰める。このセルをある一定の温度勾配の中におくと、低温側より凍結が進行する。このとき、セルを高温側から低温側へ一定速度で強制的に平行移動させると、凍結面は同じ速度で反対方向に移動することになる。すなわち、この方法では温度勾配と凍結速度を実験条件として

自由に与えることができる。また、固定された温度勾配に対し凍結面の空間的な位置は移動しないので、アイスレンズや間隙水の成長の時間変化を顕微鏡(例えば、渡辺ら, 1997; 武藤ら, 1998)やRaman分光器(Watanabe and Mizoguchi, 2000), X線散乱装置などを用いて観察することが可能である。さらに、セルに熱電対や圧力センサを組み込みアイスレンズの成長による温度(渡辺ら, 1997; Watanabe *et al.*, 1997)や間隙水圧(武藤ら, 2000)の変化を同時に測定したり、観察後の試料を用いて試料内の含水比分布の変化を測定(Muto *et al.*, 1999)することもできる。

2.2 土とガラス粉粒体中のアイスレンズ成長面近傍の顕微鏡観察

アイスレンズがどのように発生と成長を繰り返してい

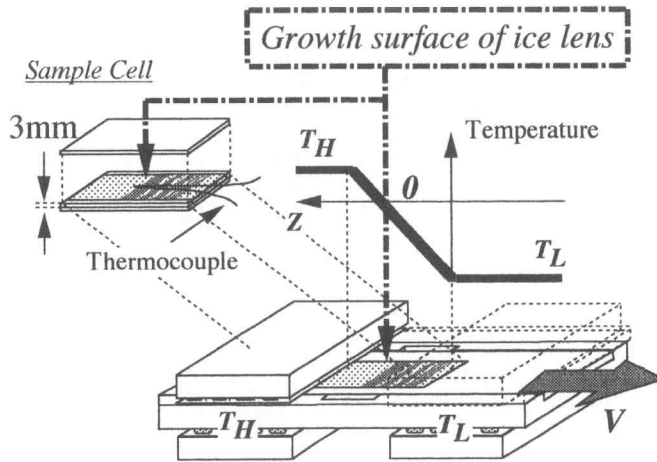


図-3 一方向凍結装置と試料セルの模式図。
一方向凍結装置により、試料の温度勾配と凍結速度を独立に制御でき、また、凍結面近傍の様子を連続的且つ微視的に観察できる。(Watanabe and Mizoguchi, 2000 より引用)

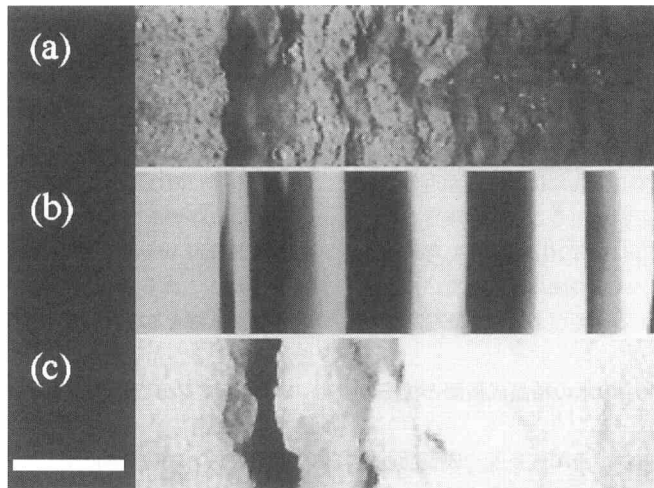


図-4 試料の凍結面近傍の様子。
(a) 藤森土, (b) 均一粒径ガラス粉粒体, (c) 粉粒体混合試料。図右側が低温側, 左側が高温側。左下のスケールは1mmを示す。

るのか、アイスレンズの生成に影響を及ぼす要因は何かを調べるために、まず、顕微鏡を用いてアイスレンズ成長過程の様子を直接観察した(渡辺ら, 1997; Watanabe *et al.*, 1997; 武藤ら, 1998; Mutou *et al.*, 1998; 渡辺ら, 1999a; Muto *et al.*, 1999; 武藤ら, 2000)。図4に藤森土, 均一粒径ガラス粉粒体, ガラス粉粒体混合試料中に見られたアイスレンズの様子を示す。図中、黒く見えるところがアイスレンズである。アイスレンズは低温側(図中右側)より発生と成長を繰り返し、

とびとびな層をなした。アイスレンズの形状や試料との境界の様子は、均一試料, 混合試料, 土試料の順で乱れた。このことから、試料の不均一性がアイスレンズの形状に影響を与えていることがわかる。また、均一粒径ガラス粉粒体を実験に用いることで、生成機構を考えるのに理想的なアイスレンズを作成できることがわかる。

これらの実験により、アイスレンズの生成について以下の結果が得られた。(1)アイスレンズの成長量は凍結速度に依存する。(2)アイスレンズの成長速度は成長面の過

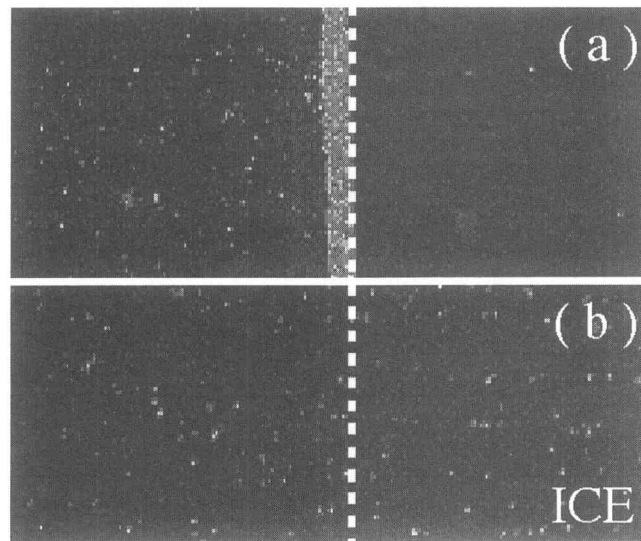


図-5 ガラス粒子分散水中の氷結晶の成長の様子。
 (a) は温度勾配 $0.3\text{ (}^\circ\text{Cmm}^{-1}\text{)}$ 、凍結速度 $1.5\text{ (}\mu\text{m s}^{-1}\text{)}$ 、
 (b) は温度勾配 $0.3\text{ (}^\circ\text{Cmm}^{-1}\text{)}$ 、凍結速度 $2.0\text{ (}\mu\text{m s}^{-1}\text{)}$ 。
 図右側が低温、左側が高温。白色の点はガラスビーズ粒子（粒径 $9.7\mu\text{m}$ ）
 である。点線は氷の成長面を示す。（武藤ら，1998 より引用）

冷却度による。(3) アイスレンズの発生温度は凍結速度による。また、アイスレンズの生成には、成長面近傍の粒子の動きやつまり具合の影響があることが示唆された。これらの結果は、アイスレンズの生成機構を考える場合、凍結速度とアイスレンズ成長面の過冷却度、成長面近傍の粒子の様子に着目する必要があること意味している。

2.3 ガラス粒子分散水中の氷の結晶成長面と粒子の挙動の観察

アイスレンズの成長に伴い、その成長面や成長面近傍の粒子一粒一粒がそれぞれどのような挙動を示すのか、またこれらの挙動に影響を与える要因は何かを調べるため、ここでは、ガラス粒子分散水中で成長している氷結晶の成長界面と、その近傍の粒子の様子を観察した（武藤ら，1998；Mutou *et al.*, 1998）。図5に氷結晶の成長面近傍の様子を示す。図中、凍結は右側より進行しており、ガラス粒子は白い点として観察される。また、氷の結晶成長面は図中に点線で示した。ガラス粒子分散水中では2種類の結晶成長が観察された。図5aでは、氷は成長界面で粒子を押しつけながら成長した。このとき、粒子は氷の成長面近傍に集積した。こうした氷の成長は土中におけるアイスレンズの成長と同じ現象と考えられる。一方、図5bでは氷は成長界面で粒子を結晶内に取り込みながら成長した。こうした氷の成長は土中における間隙

氷の形成と同じ現象と考えられる。この実験の結果、氷が粒子を押しつけるあるいは、取り込む臨界の凍結速度は粒径に依存することがわかった。また、この臨界凍結速度は Köber *et al.* (1992) の理論で説明できることがわかった。これらの結果から、アイスレンズの発生やジャンプを考える場合、この臨界凍結速度に着目する必要があることが示唆された。

2.4 ラマン分光法によるアイスレンズ近傍の粒子間隙水の測定

アイスレンズ成長面近傍の水の状態を実験的に明らかにするため、ここでは、ラマン分光装置を用いてアイスレンズ近傍の氷の分布を $1\mu\text{m}$ の精度で測定した (Watanabe and Mizoguchi, 2000)。

氷から得られるラマンスペクトルには、 225 cm^{-1} 近傍に水分子間の格子振動を示すピークが現れる (図7-R_{LN})。一方、水から得られるラマンスペクトルにはこのピークは現れない (図7-R_{room})。そこで、アイスレンズ近傍の間隙から得られるラマンスペクトルを測定すれば、そこにある水の状態が判別できる。図6は、ラマン分光装置のモニターで観察された、アイスレンズの成長面近傍の様子である。図の右側の黒色部がアイスレンズであり、左側へ成長している。白い丸はそれぞれガラス粒子である。この解像度では粒子（直径 $9.7\mu\text{m}$ ）一つ一つ、粒子間隙そのものが観察できる。図中の十字はレーザー

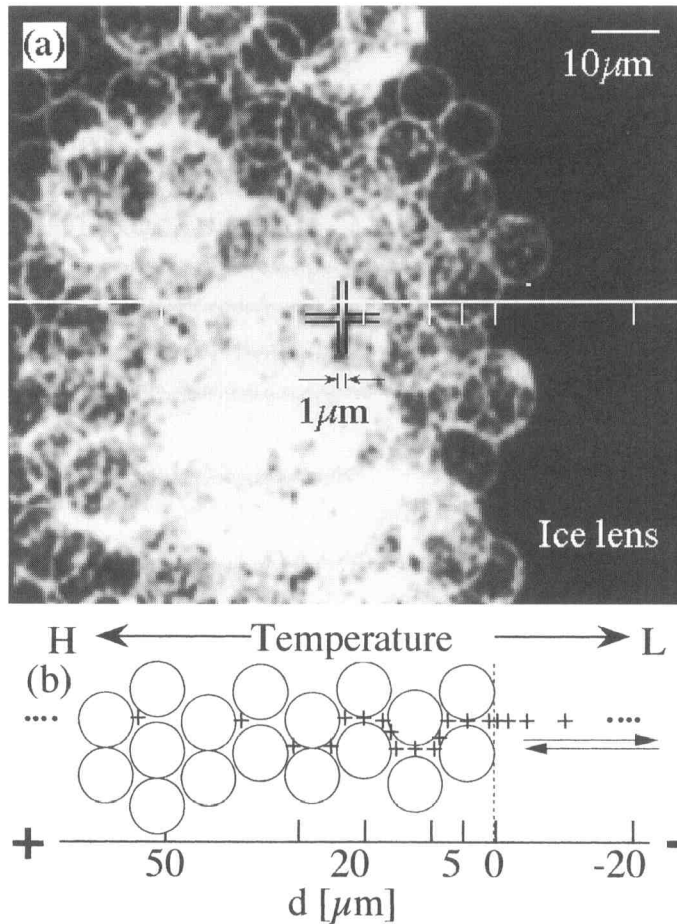


図-6 ラマン分光装置による観察画像。
 (a) アイスレンズ近傍の観察画像を画像処理したもの。白丸はガラスビーズ（粒径 $9.7\mu\text{m}$ ）、右側の黒色部はアイスレンズ。
 (b) (a) の模式図。照準を図のように $0.4\mu\text{m}$ 刻みで動かし、各粒子間隙の水の状態を調べた。 d (μm) はアイスレンズ成長面からの距離。 d は成長面より高温側で+、低温側で-をとる。(Watanabe and Mizoguchi, 2000 より引用)

光の照準であり、 $0.4\mu\text{m}$ ステップで動かせる。レーザー光はこの照準の中心の一辺 $1\mu\text{m}$ の四角内に照射される。

図7にアイスレンズおよび、その近傍の粒子間隙から得られたラマンシフトを示す。 d はアイスレンズの成長面からの距離 (μm) である。アイスレンズ内 ($d < 0$) やアイスレンズの成長面直上 ($d = 0$) では水の存在を示すピークが確認されるものの、アイスレンズの成長面より高温側の粒子間隙 ($d > 0$) には水の存在を示すピークは見られなかった。つまり、アイスレンズより高温側のいかなる粒子間隙にも、 $1\mu\text{m}$ 以上の水は存在しないことがわかる。この実験の結果、骨格構造を持たない、均一

粒径の多孔質体中でアイスレンズが成長する際には、二次凍上理論で仮定されたフローズンフリッジは存在しないことが明らかになった。

3. アイスレンズ生成モデル

2章で紹介した各実験の結果をもとに、水で飽和した均一粒径の粉粒体について、アイスレンズ生成モデルを考えた(渡辺ら, 1999 b; Watanabe *et al.*, 2000)。このモデルの主な構成は以下のようなものである。(1)アイスレンズは、凍結速度が変化することにより、発生する。(2)発生したアイスレンズは、その成長面の過冷却によって成長する。(3)アイスレンズが成長すると、成長面近傍の粒子

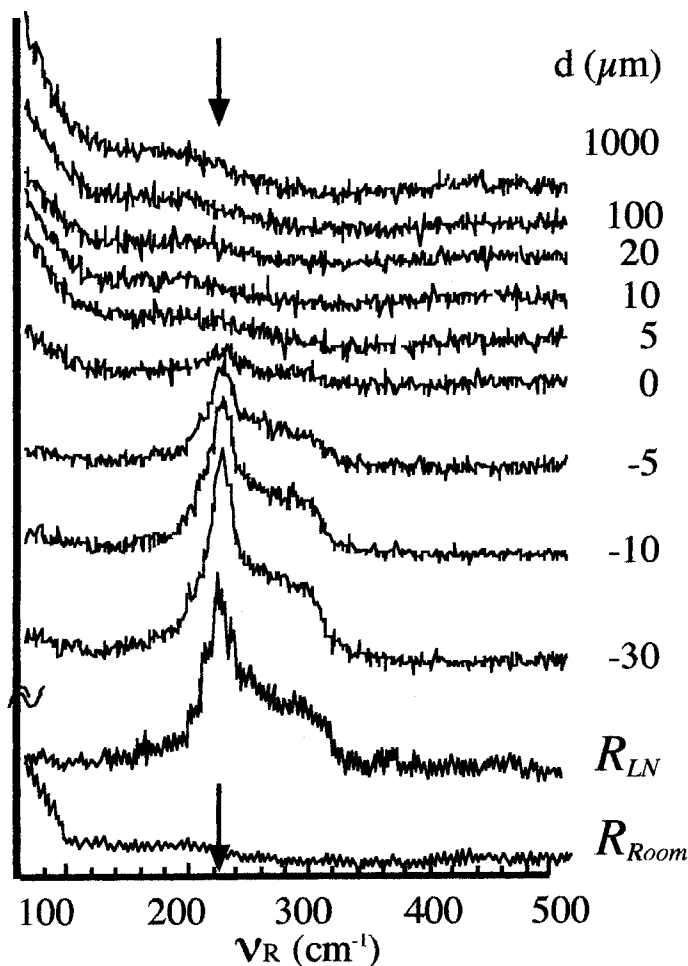


図-7 アイスレンズ近傍の間隙からえられたラマンスペクトル。(Watanabe and Mizoguchi, 2000 より引用)

の数密度と臨界凍結速度が局所的に変化する。(4) 臨界凍結速度が局所的に変化したことにより、アイスレンズがジャンプする。(5) 凍結の進行により(1)~(4)が繰り返され、結果としてアイスレンズはとびとびな層構造を形成する。

このモデルを用いて、直径 $9.7\ \mu\text{m}$ のガラス粉粒体中におけるアイスレンズの生成を計算した(図8)。まず、初期温度 2°C の直方体試料両端に温度差を与え、800 分間凍結させた(図8a)。試料内の温度勾配が一定 ($0.2^\circ\text{C}\ \text{mm}^{-1}$) となった後、試料に一定の凍結速度 ($0.6\ \mu\text{m}\ \text{s}^{-1}$) を与え、120 分間凍結させた(図8b)。図中の黒丸は実験により測定されたアイスレンズの成長量を、実線はこのモデルによって計算された成長量をそれぞれ示す。図8のように、モデルは実際のアイスレンズの発生・成長・ジャンプをよく再現した。このモデルを用いることで、

水で飽和した骨格構造をもたない多孔質体中に生成するアイスレンズの生成が計算できる。

4. おわりに

一方向凍結実験によるアイスレンズ近傍の観察から、今までブラックボックス的に扱われてきたアイスレンズ近傍の微細構造が実験的に明らかになった。この結果、骨格構造をもたない均一な多孔質体中では、既往の理論で仮定されたフローゼンフリッジは存在しなくてもアイスレンズが生成することが明らかになった。一方向凍結実験の結果、アイスレンズの生成に影響を与えるいくつかの要因とその相互関係が明らかになった。また、凍結速度や過冷却度を基に、均一な粉粒体中で不連続な層構造を形成するアイスレンズの生成機構を説明できるモデルが構築された。これらの成果は、土壌や粉粒体の凍結

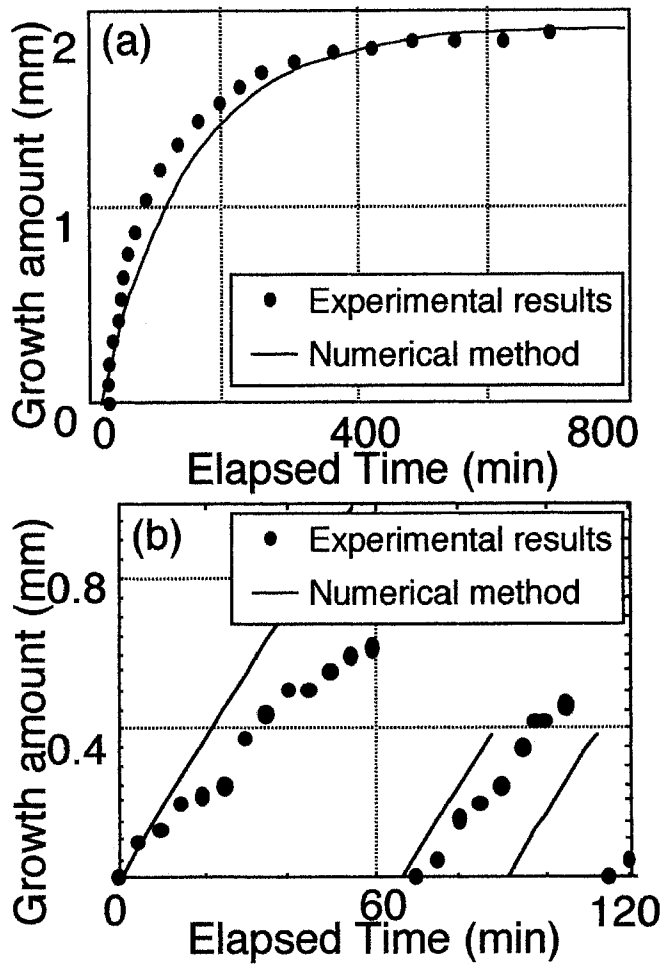


図-8 アイスレンズの成長量。
 (a) 試料両端に温度差を与え、温度勾配が一定になるまでの800分間、
 (b) 試料に一定の凍結速度を与えた120分間。(渡辺ら、1999より引用)

に関する分野において大いに貢献できると思われる。

本研究はアイスレンズの生成機構の一部を明らかにしたものである。ここで提案されたモデルは理想的な多孔質体の凍結を扱えるだけであり、実際の土の凍結すべてを扱えるものではない。今後、土中のアイスレンズの生成機構を解明していくためには、以下のようなことを考えていく必要があるだろう。まず、ここで明らかになった理想的な試料や状態における現象を、実現象に拡張する際の問題点がある。つまり、モデルを拡張する際に、溶質、電場、粒子種など様々な不均一性や非等方性をいかに評価すべきか、また様々な凍結条件、水分供給条件をどう扱うかを考えていく必要がある。また、実際に水の結晶成長がどうなっているかという、基本的かつ本質的な問題がある。微粒子が水の成長面近傍に集まること

によって、その粒子間隙の不凍水の挙動や水の融点はどんな影響をうけるのか。アイスレンズの生成時に、界面カインティック過程、輸送過程、圧力場などはどうなっているのか、このとき微粒子の存在はどんな影響を与えているのかといったことを明らかにしていく必要がある。

最後に、この研究は著者以外に、三重大学大学院生物資源学研究所の武藤由子氏、東京大学大学院農業生命科学研究科の溝口勝助教授、東京国立文化財研究所の石崎武志博士によるところが大きいことを付け加え、謝辞としたい。

引用文献

Conte, J.L. (1850): Observation on a remarkable exu-

- dation of ice from the stems of vegetables, and on a singular protrusion of icy columns from certain kinds of Earth during frosty weather. *Philosophical Magazine*, **36** : 329.
- Gilpin, R.R. (1980) : A model for the prediction of ice lensing and frost heave in soils. *Water Resources Research*, **16** : 918~930.
- 広井政彦, 水崎隆雄 (1991) : He (4) の凍上現象. *結晶成長学会誌*, **18** : 217~223.
- Konrad, J.M. and Morgenstern, N.R. (1980) : A mechanistic theory of ice lens formation in fine-grained soils. *Canadian Geotechnical Journal*, **17** : 473~486.
- Körber, C., Lipp, G., Kochs, M. and Rau, G. (1992) : Ice crystal growth in aqueous solutions and suspensions. *Physics and Chemistry of Ice*, ed. Maeno, N. and Hondoh, T., Hokkaido University Press, Sapporo : 291~298
- Mazur, P. (1970) : Cryobiology : The freezing of biological systems. *Science*, **168** : 939~949.
- Miller, R.D. (1972) : Freezing and heaving of saturated and unsaturated soils. *Highway Research Record*, **393** : 1~11.
- Miller, R.D. and Koslow, E.E. (1980) : Computation of rate of heave versus load under quasi-steady state. *Cold Regions Science and Technology*, **2** : 243~252.
- 武藤由子・渡辺晋生・石崎武志・溝口 勝 (1998) : ガラスビーズ中におけるアイスレンズ形成過程の顕微鏡観察. *農業土木学会論文集*, **194** : 97~103.
- Mutou, Y., Watanabe, K., Mizoguchi, M. and Ishizaki, T. (1998) : Microscopic observation of ice lensing and frost heaves in glass beads. *Permafrost*, ed. Lewkowicz, L.A. and Allard, M., International Permafrost Association : 783~787.
- Muto, Y., Watanabe, K., Mizoguchi, M. and Ishizaki, T. (1999) : The relationship between ice lens growth and water conditions. *EOS transactions, American Geophysical Union*, **80** : 427.
- 武藤由子・渡辺晋生・溝口 勝 (2000) : 凍結過程にある多孔質体中の間隙水圧の測定. *農業土木学会大会講演要旨集* : 印刷中
- Penner, E. (1967) : Heaving pressure in soils during unidirectional freezing. *Canadian Geotechnical Journal*, **4** : 398~408.
- Sill, R.C. and Skapski, A.S. (1956) : Method for the determination of the surface tension of solids, from their melting points in thin wedges. *Journal of Chemical Physics*, **24** : 644~651.
- Taber, S. (1929) : Frost heaving. *Journal of Geology*, **37** : 428~461.
- Thyholt, K. and Isaksson, T. (1997) : Differentiation of frozen and unfrozen beef using near-infrared spectroscopy. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, **73** : 525~532.
- 渡辺晋生・溝口 勝・石崎武志 (1997) : 凍結過程における土の凍結面近傍の微視的構造についての実験研究. *農業土木学会論文集*, **191** : 53~58.
- Watanabe, K., Mizoguchi, M., Ishizaki, T. and Fukuda, M. (1997) : Experimental study on microstructure near freezing front during soil freezing. *Ground Freezing 97*, ed. Knutsson, S., A.A. Balkema, Rotterdam : 187~192.
- 渡辺晋生・溝口 勝, 1997, バルス型 NMR 法による塩を含む土の不凍水量測定. *農業土木学会大会講演要旨集* : 112~113.
- 渡辺晋生・武藤由子・溝口 勝 (1999 a) : 不均一粒径ガラスビーズ中のアイスレンズの生成. *農業土木学会大会講演要旨集* : 786~787.
- 渡辺晋生・武藤由子・溝口 勝 (1999 b) : ガラス粉粒体中の層状氷生成モデル. *日本雪氷学会誌 雪氷*, **61** : 207~214.
- Watanabe, K. and Mizoguchi, M. (2000) : Ice configuration near a growing ice lens in a freezing porous media consisting of micro glass particles. *Journal of Crystal Growth*, **213** : 135~140.
- Watanabe, K., Muto, Y. and Mizoguchi, M. (2000) : A model for the formation of ice lenses in an unconfined, water-saturated, porous medium consisting of spherical particles. *Ground Freezing*, A.A. Balkema, Rotterdam : in press.
- Wilén, L.A. and Dash, J.G. (1995) : Frost heave dynamics at a single crystal interface. *Physical Review Letters*, **74** : 5076~5079.
- Wisniewski, M., Lindow, S.E. and Ashworth, E.N. (1997) : Observations of ice nucleation and propagation in plants using infrared video thermography. *Plant Physiology*, **113** : 327~334.

受稿年月日 : 2000年4月7日
 受理年月日 : 2000年4月24日